

文章编号: 1007-4627(2015)03-0347-06

高能重离子辐照的 ODS 铁素体钢脆化效应研究

刘娟^{1,2}, 张崇宏¹, 杨义涛¹, 宋银¹, 张丽卿¹, 缙洁¹, 咸永强^{1,2}, 陈家超³, Jinsung Jang⁴

(1. 中国科学院近代物理研究所, 兰州 730000;

2. 中国科学院大学, 北京 100049;

3. Paul Scherrer Institute Villigen PSI, 5232 Switzerland;

4. 韩国原子力研究所, 大田市 305-353, 韩国)

摘要: 与传统的铁素体钢相比, 氧化物弥散强化 (ODS) 的铁素体钢具有更优的耐高温和抗辐照性能, 近年来成为先进核能装置重要的候选结构材料。在 HIRFL 的扇聚焦型回旋加速器 (SFC) 材料辐照终端, 对一种氧化物弥散强化 (ODS) 铁素体钢 MA956 进行了高能 Ne 离子辐照实验, 旨在研究级联碰撞损伤和惰性气体原子注入条件下该材料力学性能的变化。利用辐照终端的能量衰减装置将 SFC 出口 123.4 MeV 的离子能量分解为介于 38.5~121.0 MeV 之间的 30 个入射能量值, 并通过双面辐照在厚度 60 μm 的样品中均匀产生了损伤。辐照剂量为 9×10^{16} ions/cm², 在样品中的平均位移损伤为 0.7 dpa, 注入的 Ne 原子浓度为 350 appm。辐照期间样品温度保持在 440 °C 附近。对辐照前后的样品分别在室温和 500 °C 下进行了小冲杆试验 (Small-punch Test), 获得了辐照前后样品的加载位移曲线, 由此得到该辐照条件下样品的延性损失为 18%~26%。通过扫描电子显微镜观察了断口形貌和厚度变化, 估算了样品的等效断裂应变和断裂韧性。结果表明, MA956 钢经过高能 Ne 离子辐照后等延伸率减小, 断裂韧性降低, 样品发生了一定的脆化。透射电镜结果说明氧化物弥散相界面处微空洞的形成可能是导致脆化的原因。

关键词: ODS 铁素体钢; 高能重离子; 辐照损伤; 延伸率; 断裂韧性

中图分类号: O482.1; O77⁺4 **文献标志码:** A **DOI:** 10.11804/NuclPhysRev.32.03.347

1 引言

能源与环境是当代社会面临的重大问题, 以第四代裂变堆、聚变堆为代表的先进核能有望大规模替代化石能源, 满足人们日益增长的能源需求, 并有效减少温室气体排放, 为社会提供长期清洁的能源。D-T 核聚变反应堆能够产生巨大的能量, 但同时会释放高能中子和高能 He 离子, 导致聚变堆的第一壁和包层等内部构件遭受严重的辐照损伤。因此, 研发耐高温、抗辐照的结构材料是成功建造聚变堆的关键^[1]。上世纪末发展起来的氧化物弥散强化 (oxide-dispersion-strengthening, ODS) 技术将高密度的氧化物纳米颗粒嵌入到金属材料基体, 以有效钉扎位错、晶界以及吸附 He 杂质原子, 可以显著提高材料高温抗蠕变强度和抗辐照能力^[2]。近年来的辐照实验表明, 晶粒中的氧化物弥散相将惰性气体原子以纳米尺寸的小氦泡的形式俘获在界面处, 避免了在晶界上形成大的氦泡, 同时有效减小了高剂量下的空

洞肿胀^[3-5]。但是目前, 在高位移损伤和高浓度惰性气体注入情形 ODS 钢的微结构和力学性能变化的研究仍然不足。

高能重离子在材料中能够产生大量原子位移损伤, 并且级联损伤的构型与高能中子产生的相似, 同时, 重离子辐照的样品活化小, 易于操作分析, 因此高能重离子辐照实验成为研究先进反应堆材料辐照损伤的有效手段。由于重离子加速器和在建的强流中子源 (如国际聚变材料辐照装置 IFMIF 和国内 D-Be 小型中子源) 的高剂量辐照空间极其有限, 所以辐照前后材料的力学性能的变化研究往往需要借助小样品技术 (miniature specimen technique)^[6]。利用小样品技术, 通过对少量材料进行试验就可以得出如弹性模量、屈服强度、抗拉强度、延伸率、断裂韧性、蠕变性能等主要力学性能参数^[7]。

本工作利用兰州重离子加速器辐照条件, 结合小样品技术和扫描电镜样品断口分析, 对一种 ODS 铁素体

收稿日期: 2015-01-19; 修改日期: 2015-03-12

基金项目: 国家磁约束核聚变能发展研究专项(2011GB108003); 国家重点基础研究发展计划(973计划)资助项目(2010CB832904)

作者简介: 刘娟(1989-), 女, 甘肃榆中人, 硕士研究生, 从事材料的辐照损伤研究;

通信作者: 张崇宏, E-mail: c.h.zhang@impcas.ac.cn.

钢的辐照损伤效应进行了研究。

2 实验

实验采用的材料 MA956 是一种 ODS 铁素体钢合金，由 INCO 公司提供，主要化学成分(质量分数, wt.%)为: C 0.02, Si 0.04, Mn 0.10, P 0.03, S 0.008, Cr 19.4, Ni 0.05, Ti 0.38, Al 4.80, N 0.022, Cu 0.02, Y₂O₃ 0.51。该合金经机械冶金(MA)和热挤出步骤获制备，热挤出温度为 1300 °C。对微结构的透射电镜分析表明，合金中晶粒充分长大而氧化物弥散相仍然保持稳定^[8]。用于重离子辐照实验的样品被切成长方形(13 mm×6 mm)，两个表面得到充分机械、电解抛光处理，厚度约为 60 μm。

在兰州重离子研究装置(HIRFL)的扇聚焦型回旋加速器(SFC)的实验终端进行了样品的辐照实验。使用能量 6.17 MeV/u(总能量 123.4 MeV)的²⁰Ne 离子。由于 Ne 在金属中具有与 He 相似的迁移和聚集行为，且其原子碰撞离位截面远大于 He 离子，因此采用高能 Ne 离子可以在引入高位移损伤的同时模拟 He 的行为^[9]。

辐照终端的外观及结构图见图 1，由测束流系统、离子能量衰减装置、辐照靶室(含可升降样品台、后法拉第筒)组成。在样品台的前方束线放置一个铝箔三明治测试装置来实时监测束流强度，其中厚度 2 μm 的铝箔用于收集重离子释放的电荷，在抑制光栏施加 -300 V 偏压用以抑制二次电子发射。²⁰Ne 离子穿过该铝箔后，能量衰减为 121.0 MeV。在三明治结构之后放置有离子能量衰减装置，由 30 片不同厚度的铝箔组成，实验中铝箔减能片依次低速扫过束线，由此将 Ne 束能量分解为 30 种不同的能量(38.5 ~ 121.0 MeV 范围)。图 2 为利用 SRIM 模拟程序计算的经过能量衰减装置后²⁰Ne 离子在铁基样品中产生的损伤及 Ne 原子的分布情况,可见 Ne 原子浓度和原子离位损伤的包络线从近表面至深度 31 μm 呈坪台分布，在辐照剂量 9×10¹⁶ ions/cm²时产生的平均移位损伤约为 0.7 dpa，注入的 Ne 原子平均浓度约为 350 appm。通过双面辐照，在厚度 60 μm 的样品内部产生了近似均匀的离位损伤和 Ne 浓度分布。辐照过程靶室真空为 10⁻⁵ Pa,样品温度保持在 440 °C(受束流加热效应影响的波动范围 15 °C)。

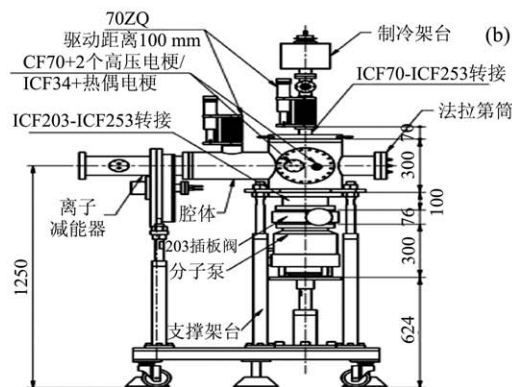
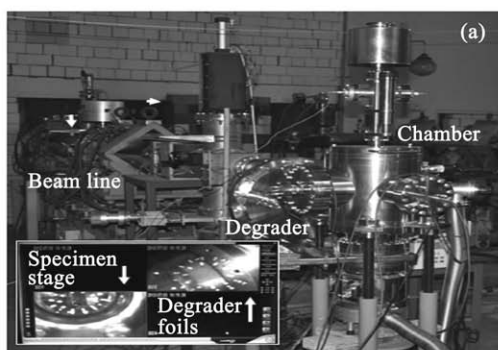


图 1 SFC辐照终端的外观(a)和结构图(b) 其中(a)中的插图为样品和减能片的实时画面。

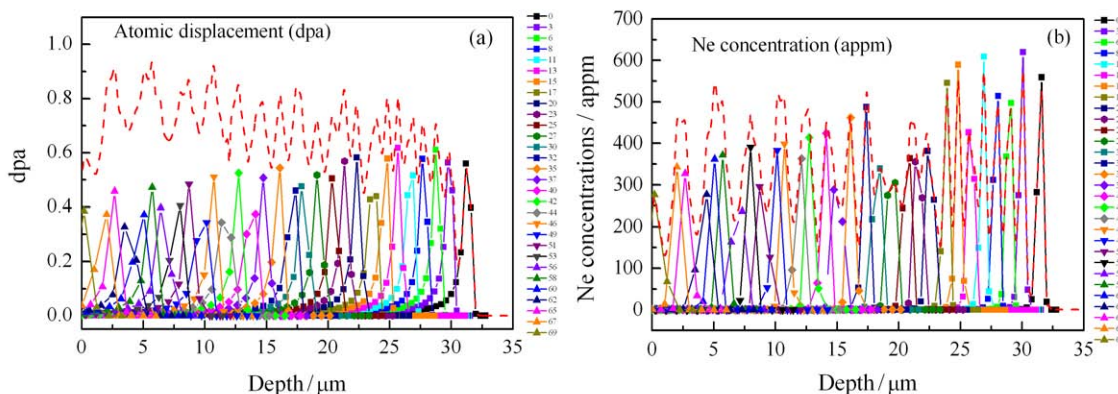


图 2 (在线彩图) 高能Ne离子辐照后的 MA956 样品中(a)原子离位损伤和(b)Ne浓度的计算结果 右侧栏中数据为减能器系列A1箔的厚度。

利用一台小冲杆试验 (Small-punch Test) 装置获得了辐照前后样品的载荷-位移曲线数据。具体步骤为, 将从未辐照和辐照后的样品上冲出直径为 3 mm 的圆片试样, 置于小冲杆试验台并可靠夹持。小冲杆试验台夹具示意图见图 3, 施力件由直径为 1 mm 的圆球和冲杆组成, 其中圆球由 Al₂O₃ 单晶制成, 冲杆、上下夹具及

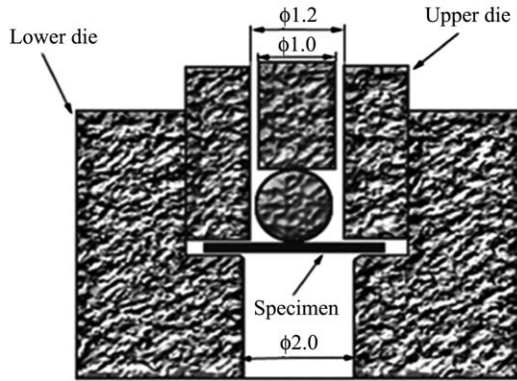


图 3 小样品装置的剖面图

固定螺栓均由不锈钢制成。夹具上孔直径为 1.2 mm, 下孔直径为 2 mm, 测试时试样固定在上下夹具之间。位移速率为 0.017 mm/s, 分别在室温和 500 °C 下试验, 得到样品的载荷位移曲线。

对小冲杆试验前后的样品, 用扫描电子显微镜 (SEM) 观察断口形貌, 并测量断口最薄处的厚度用于估算材料的等效断裂应变及断裂韧性值。

3 实验结果与分析

3.1 小冲杆试验数据的分析

图 4(a) 和 (b) 分别表示未辐照/辐照后的 ODS 钢 MA956 在室温和 500 °C 小冲杆试验的载荷位移曲线。从图 4 可以看出, 样品经过辐照后曲线斜率增大, 同时最大载荷增大, 说明样品发生了硬化。辐照硬化可归因于辐照产生的缺陷对位错线的钉扎效应。同时, 辐照后样品的断裂位移明显减小, 表明辐照引起了样品材料的延性损失。

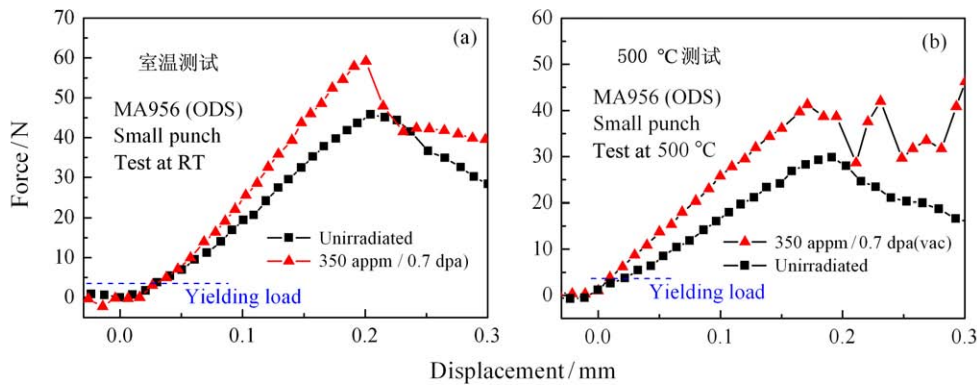


图 4 (在线彩图) 辐照前和辐照后的 MA956 样品小冲杆试验载荷位移曲线

图中曲线(-■-)表示未辐照样品, 曲线(-▲-)表示高能²⁰Ne 离子辐照样品(350 appm/0.7 dpa)。

前人的研究表明, 小冲杆试验测定的屈服载荷和极限载荷与标准拉伸试件得到的屈服强度和极限强度之间存在如下线性关系:

$$\sigma_{y,u} = \alpha P_{y,u} / t_0^2 - \beta, \quad (1)$$

其中: $\sigma_{y,u}$ 为屈服强度和极限强度; $P_{y,u}$ 为屈服载荷和最大载荷; t_0 为试样的初始厚度; α 和 β 为拟合系数^[10]。利用这个关系已有氦束、中子辐照引起硬化效应的研究报道^[11-12]。但是利用小冲杆试验对辐照脆化效应, 如延伸率、断裂韧性变化的研究仍然很少。其中, 断裂韧性表征材料阻止裂纹扩展的能力, 断裂韧性与等效断裂应变呈线性关系。通过测量材料的等效断裂应变可以计算材料的断裂韧性。前人系统研究了未辐照

的钢铁材料的小冲杆测试方法, 提出了几个经验公式, 可推算样品的延伸率和断裂韧性值^[10-14]。其中, 小冲杆试验的有效断裂应变 $\bar{\epsilon}_q$ 和断裂位移 δ^* 之间, 存在如下幂函数关系:

$$\bar{\epsilon}_q = \ln(t/t_0) = \beta(\delta^*/t_0)^n, \quad (2)$$

其中: t_0 为试样的初始厚度; t 为小冲杆试验后试样的厚度; β 为常数与实验中样品尺寸有关; 指数 n 为 3/2 或者 2 由钢的种类确定; δ^* 为断裂位移^[10]。

我们进一步比较未辐照的铁素体钢(包括 MA956 钢)的拉伸试验与小冲杆试验数据的关联, 发现拉伸试验的总延伸率 E_{tot} 与小冲杆试验的断裂位移 δ^* 之间也存在类似幂函数关系^[16]:

$$E_{\text{tot}} = 0.014(\delta^*/t_0)^{3/2}。 \quad (3)$$

基于该经验关系, 可以推算样品材料的延性损失大小。对应图 4 小冲杆测试结果, 以载荷降为最大值的 70% 定义断裂位移, 得到各样品的总延伸率估算值:

室温测试: 14.1%(辐照前), 10.5%(辐照后);

500 °C 测试: 11.2%(辐照前), 9.2%(辐照后)。

因此, 高能 Ne 离子辐照引起的样品延伸率损失分别为 26%(室温)和 18%(500 °C)。

3.2 扫描电镜断口分析

图 5 为经过室温小冲杆试验后的样品的形貌图, 样品中间有小帽突起, 断口环形分布。根据有限元模拟分析, 断裂发生的位置离中心有一定的距离, 是剪切应

力最大的位置^[13]。其中图 5(a) 为未辐照的 MA956 样品的断口低倍像, 环形断口边缘部分隆起, 且边缘被沿径向分布的裂纹撕裂。图 5(b) 为辐照后的 MA956 样品断口低倍像, 辐照后的样品仅出现了环形断口, 且断口边缘规则平整。对比图 5(a), (b) 可知, ODS 铁素体钢 MA956 经过辐照后韧性降低。

图 5(c) 为 MA956 辐照前断口的高倍像, 样品断裂后断面处存在大量的韧窝, 呈现明显韧性断口特征。图 5(d) 为 MA956 辐照后断口的高倍像, 辐照后断口比较光滑平整, 较少韧窝出现, 呈现脆性断口特征。对比图 5(c), (d) 可知, 样品经过辐照以后出现了一定的脆化现象。

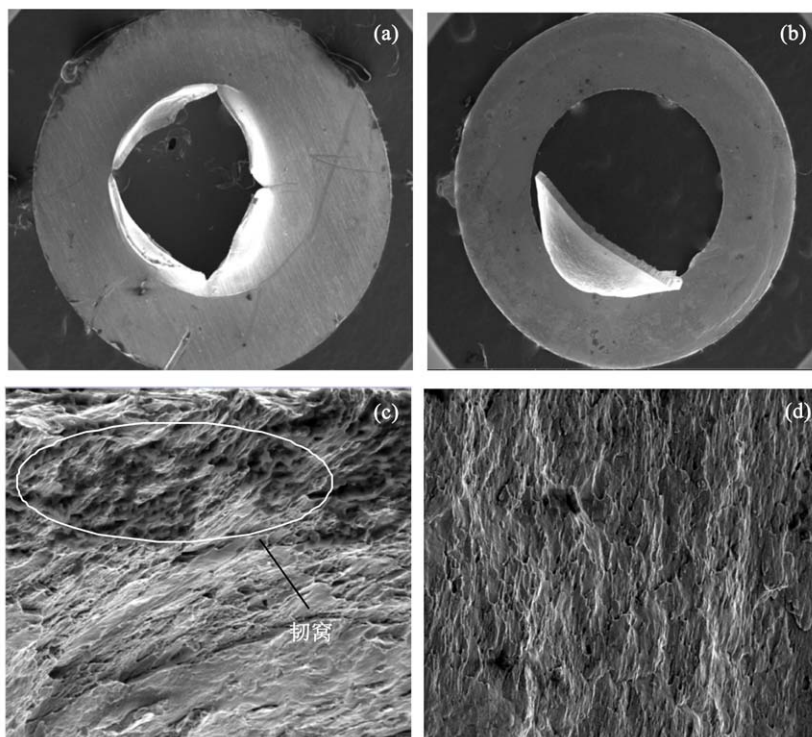


图 5 辐照前(a), (c)和辐照后(b), (d)MA956的室温测试样品的断面形貌像(二次电子成像)

3.3 等效断裂应变和断裂韧性的计算

小冲杆试验样品受双轴应力作用, 双轴应力会影响裂纹尖端的应力场、裂纹扩展方向以及裂纹尖端塑性区的形状和大小, 也会对弹塑性材料的断裂韧性有一定影响^[7]。Mao 等^[10,15]提出, 与小球接触区的等效断裂应变可由试验前后厚度的比值确定, 依据公式(2)估算。根据 Bayoumi 等^[14]的研究, 在弹塑性区域, 断裂韧性 J_{IC} 和等效断裂应变 $\bar{\epsilon}_q$ 满足下面的关系:

$$J_{IC} = c_1 \bar{\epsilon}_q + c_2, \quad (4)$$

式中 c_1 和 c_2 是材料力学性能和微结构相关的参数。

根据 Mao 等^[10,15]的研究, 对直径为 3.0 mm 圆片钢铁试样, 小冲杆试验得到的有效断裂应变与材料断裂韧性存在如下经验关系:

$$J_{IC} = 345 \bar{\epsilon}_q - 113 (\text{kJ/m}^2)。 \quad (5)$$

根据上述公式, 我们计算了 MA956 铁素体钢样品高能 Ne 离子辐照前后的等效断裂应变和断裂韧性, 结果见表 1。

表1 ODS铁素体钢MA956辐照前后厚度变化以及 ε_c 、 J_{IC} 的估算值

样品	温度 $T/^\circ\text{C}$	辐照条件	初始厚度 $t/\mu\text{m}$	冲压后厚度 $t_0/\mu\text{m}$	等效断裂应变 ε_c	断裂韧性估算值 $J_{IC}/(\text{kJ}/\text{m}^2)$
MA956	RT	辐照前	61	17	1.3	322
MA956	RT	辐照后	60	23	1.0	223
MA956	500	辐照前	48	12	1.4	358
MA956	500	辐照后	60	22	1.0	236

常温和500 °C测试结果表明, 高能Ne离子辐照的样品等效断裂应变、断裂韧性估算值都减小。根据表1, 室温下等效断裂应变的变化为-0.3, 断裂韧性的变化为-99 kJ/m²; 在500 °C下等效断裂应变的变化为-0.4, 断裂韧性的变化为-122 kJ/m²。两个温度下等效断裂应变的变化率在23%~28%范围, 断裂韧性的变化率在31%~34%范围, 高温测试条件下略高。

根据上述结果和分析, 铁素体钢MA956经过高能Ne离子辐照以后, 在室温和高温测试均显示出延伸率下降, 等效断裂应变减小, 断裂韧性降低, 说明材料发生了一定的脆化。我们近期利用透射电镜对样品微结构的观察说明, 高能Ne离子辐照的MA956钢样品中, 氧化物弥散相的界面处形成了纳米量级的空洞(图6), 该空洞的形成是由弥散相界面处Ne原子和空位的富集导致的^[16]。高浓度的微空洞会在样品形变过程促进微裂纹的形成和扩展, 造成材料的脆化^[17]。但是, 本实验的结果也说明, 在注Ne浓度为350 appm的情形下, MA956钢仍然保留了大部分的延性, 与传统钢铁材料有显著不同。Schroeder等^[18]的高能He离子辐照实验表明, 在注He浓度高于100 appm浓度时奥氏体钢样品发生了显著的脆化, 甚至表现为脆性断裂; 原因在于辐照过程材料晶界处形成了大量的氦泡, 导致材料晶界的断裂。我们近期开展的MA956钢和一种传统铁素体钢(T122)的对比辐照实验表明, 相同剂量的Ne离子辐照下传统铁素体钢的脆化效应更加明显, 原因在于T122钢中晶界处有大量微空洞形成并加速长大^[16]。

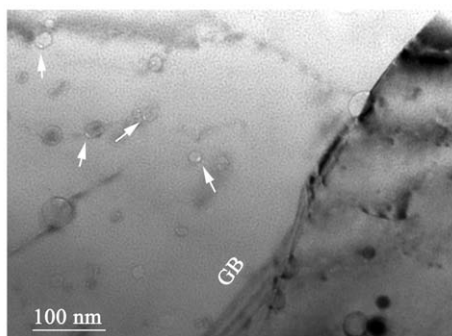


图6 高能Ne离子辐照后的MA956钢样品的透射电镜明场欠焦像
箭头表示微空洞的位置, GB表示晶界位置。

ODS钢较强的抗脆化能力主要来自晶粒内部氧化物弥散相的界面对Ne原子的俘获作用, 抑制了Ne原子向晶界处扩散聚集。另外, 氧化物弥散相还能够有效钉扎位错的运动, 抑制了位错对于自间隙原子的吸收, 从而抑制了空洞通过位错偏置机制的快速长大^[3]。该机制也会导致ODS钢形变过程微裂纹的形成、扩展过程减慢。进一步澄清ODS钢中氧化物弥散相的界面与惰性气体原子、Frenkel对的相互作用机理, 对于核用ODS钢的性能优化具有重要意义。

4 结论

在HIRFL实验终端对一种ODS铁素体钢(MA956)样品开展了高能Ne离子束辐照实验, 位移损伤水平0.7 dpa(注Ne浓度350 appm), 随后进行了小冲杆试验、断口的扫描电镜观察以及微结构的透射电子显微镜观察, 研究了样品辐照前后力学性能的变化。结果表明, MA956钢经过高能Ne离子辐照后, 延伸率、等效断裂应变、断裂韧性均减小, 说明辐照后样品发生了一定的脆化现象。氧化物弥散相界面处微空洞的形成可能是导致脆化的原因。进一步澄清ODS钢中氧化物弥散相的界面与惰性气体原子、点缺陷的相互作用机理, 对于核用ODS钢的性能优化具有重要意义。

致谢 感谢兰州重离子加速器国家实验室的运行组人员在辐照实验中的帮助。

参考文献:

- [1] ZINKLE S J, BUSBY J T. *Materials Today*, 2009, **12**: 12.
- [2] UKAI S, NISHIDA T, OKADA H, *et al.* *Journal of Nuclear Science and Techniques*, 1997, **34**: 256.
- [3] KIM I S, HUNN J D, HASHIMOTO N, *et al.* *Journal of Nuclear Materials*, 2000, **280**: 264.
- [4] YUTANI K, KISHIMOTO H, KASADA R, *et al.* *Journal of Nuclear Materials*, 2007, **367-370**: 423.
- [5] ZHANG C H, JANG J, CHO H D, *et al.* *Journal of Nuclear Materials*, 2009, **386-388**: 457.
- [6] JUNG P, HISHINUMA A, LUCAS G E, *et al.* *Journal of Nuclear Materials*, 1996, **232**: 186.
- [7] DING Keqin, WU Yongli. *Journal of experimental mechanics*, 2009, **24**(6): 545. (in Chinese)
(丁克勤, 吴永礼. *实验力学*, 2009, **24**(6): 545.)

- [8] ZHANG C H, KIMURA A, KASADA R, *et al.* Journal of Nuclear Materials, 2011, **417**: 221.
- [9] ZHAGN Chonghong, YANG Yitao, SONG Ying, *et al.* Nuclear Physics Review, 2009, **26**(1): 48. (in Chinese)
(张崇宏, 杨义涛, 宋银, 等. 原子核物理评论, 2009, **26**(1): 48.)
- [10] MAO Xinyuan, TAKAHASHI Hideaki. Journal of Nuclear Materials, 1987, **150**: 42.
- [11] JIA X, DAI Y. Journal of Nuclear Materials, 2003, **323**: 360.
- [12] KIMURA A, KASADA R, SUGANO R, *et al.* Journal of Nuclear Materials, 2000, **283-287**: 827.
- [13] CAMPITELLI E N, SPATIG P, BONADE R, *et al.* Journal of Nuclear Materials, 2004, **335**: 366.
- [14] BAYOUMI M R, BASSIM M N. International Journal of Fracture. 1983, **23**: 71.
- [15] MAO Xinyuan, SHIJI Tetsuo, TAKAHASHI Hideaki. Journal of Testing and Evaluation, 1987, **150**: 30.
- [16] ZHANG Chonghong, YANG Yitao, SONG Ying, *et al.* Journal of Nuclear Materials, 2014, **455**: 61.
- [17] TRINKAUS H. Journal of Nuclear Materials. 1983, **118**: 39.
- [18] SCHROEDER H, KESTERNICH W, ULLMAIER H. Nuclear Engineering and Design/Fusion 1985, **2**: 65.

Embrittlement of an ODS Ferritic Steel Under High-energy Heavy-ion Irradiation

LIU Juan^{1,2}, ZHAGN Chonghong¹, YANG Yitao¹, SONG Yin¹, ZHAGN Liqing¹, GOU Jie¹,
XIAN Yongqiang^{1,2}, CHEN Jiachao³, Jinsung Jang⁴

(1. Institute of Modern Physics, Chinese Academy of Sciences, Lanzhou 730000, China;

2. University of Chinese Academy of Sciences, Beijing 100049, China;

3. Paul Scherrer Institute, Villigen PSI 5232, Switzerland;

4. Korea Atomic Energy Research Institute, Dajeon 305-353, South Korea)

Abstract: Oxide dispersion strengthened (ODS) ferritic steels have better high-temperature creep rupture strength and higher irradiation resistance than conventional ferritic steels, and show high prominence of application in advance nuclear reactors. Their stability under high-dose radiation conditions needs to be clarified. In the present study, a commercial ODS ferritic steel MA956 were irradiated with high ^{20}Ne ions at a terminal chamber of the Sector-focused Cyclotron (SFC) at HIRFL (Heavy-ion Research Facility in Lanzhou). With the energy gradient degrader of the irradiation chamber, the primary energy (123.4 MeV) of the Ne-ion was dispersed into 30 different energies between 38.5 ~ 121.0 MeV, which resulted in a plateau distribution of lattice damage in the specimens. The specimens were irradiated from both sides so that the whole 60 μm thickness was nearly uniformly damaged. The specimen temperature was maintained around 440 $^{\circ}\text{C}$ during the irradiation. The irradiation dose is about 9×10^{16} ions/ cm^2 , corresponding to a damage level of 0.7 dpa and a Ne concentration of 350 appm. The specimens before and after irradiation were tested with the Small-punch Test technique, at room temperature and 500 $^{\circ}\text{C}$, respectively. The fracture morphology was observed by scanning electron microscopy. The results show that MA956 underwent some loss of ductility and fracture toughness after the irradiation with high-energy ^{20}Ne ions. It may be ascribed to the formation of nano-scale cavities at the oxides/matrix interfaces in the ODS steel specimens under irradiation.

Key words: ODS ferritic steel; heavy ion; irradiation damage; ductility; fracture toughness

Received date: 19 Jan. 2015; **Revised date:** 12 Mar. 2015

Foundation item: National Magnetic Confinement Fusion Program(2011GB108003); National Basic Research Program of China (973 Program)(2010CB832904)

Corresponding author: Zhang Chonghong, E-mail: c.h.zhang@impcas.ac.cn.

<http://www.npr.ac.cn>